

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **09320611 A**

(43) Date of publication of application: **12 . 12 . 97**

(51) Int. Cl

H01M 4/86

H01M 8/02

H01M 8/10

(21) Application number: **08157419**

(22) Date of filing: **30 . 05 . 96**

(71) Applicant: **ASAHI GLASS CO LTD**

(72) Inventor: **YOSHITAKE MASARU
YOSHIDA NAOKI
ISHIZAKI TOYOAKI
TERASONO SHINJI**

**(54) SOLID POLYMER TYPE FUEL CELL AND
ELECTRODE THEREFOR**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an electrode for solid polymer type fuel cells which can durably retain a sufficient water repelling property by coating the surface of fine pores of a porous gas diffusion electrode with a specified solvent-soluble fluorine-containing polymer.

SOLUTION: This porous gas diffusion electrode consists of a catalytic powder and an ion-exchange resin and a

fluorine-containing polymer produced by using a solution of a solvent soluble fluorine-containing polymer having practically no ion-exchange group (for example, sulfonic acid group, carboxylic acid group, etc.) exists in at least a part of the surface of fine pores of the electrode. The existing amount of the fluorine containing polymer in the porous electrode is preferably 0.01-30wt.%. As the fluorine-containing polymer, perfluorocarbon polymers having an aliphatic ring structure are preferable. Non-acrylic type partially fluorinated polymers are among other examples.

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-320611

(43) 公開日 平成9年(1997)12月12日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M 4/86			H 0 1 M 4/86	M
	8/02		8/02	B
	8/10		8/10	E

審査請求 未請求 請求項の数5 F D (全 7 頁)

(21) 出願番号	特願平8-157419	(71) 出願人	000000044 旭硝子株式会社 東京都千代田区丸の内2丁目1番2号
(22) 出願日	平成8年(1996)5月30日	(72) 発明者	吉武 優 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株式会社中央研究所内
		(72) 発明者	吉田 直樹 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株式会社中央研究所内
		(72) 発明者	石崎 豊暁 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株式会社中央研究所内
		(74) 代理人	弁理士 本多 一郎

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池およびその電極

(57) 【要約】

【目的】電極へ簡便かつ均一に耐久性よく撥水性を付与することが可能である方法を提供するとともに、電池特性の経時劣化の少ない固体高分子型燃料電池用ガス拡散電極を提供する。

【構成】触媒粉末およびイオン交換樹脂からなる多孔質ガス拡散電極であって、該電極の有する細孔表面の少なくとも一部に、イオン交換基を実質上有しない可溶性含フッ素重合体の溶液を使用して得られた含フッ素重合体が存在している。

1

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 触媒粉末およびイオン交換樹脂からなる多孔質ガス拡散電極であって、該電極が有する細孔表面の少なくとも一部に、イオン交換基を実質上有しない溶媒可溶性含フッ素重合体の溶液を使用して得られた該フッ素重合体が存在していることを特徴とする固体高分子型燃料電池用電極。

【請求項 2】 イオン交換基を実質上有しない含フッ素重合体の多孔質電極における存在量が 0.01～30 重量%である請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池用電極。

【請求項 3】 イオン交換基を実質上有しない含フッ素重合体が、脂肪族環構造を有するパーフルオロカーボン重合体である請求項 1 または 2 記載の固体高分子型燃料電池用電極。

【請求項 4】 イオン交換基を実質上有しない含フッ素重合体が、非アクリル系の部分フッ素化された重合体である請求項 1 または 2 記載の固体高分子型燃料電池用電極。

【請求項 5】 イオン交換膜なる固体高分子電解質膜とこの膜の両面に配した電極とからなる固体高分子型燃料電池であって、上記電極のうちの少なくとも一方の電極は、触媒粉末およびイオン交換樹脂からなる多孔質ガス拡散電極であって、該電極が有する細孔表面の少なくとも一部に、イオン交換基を実質上有しない溶媒可溶性含フッ素重合体の溶液を使用して得られた該フッ素重合体が存在していることを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体高分子型燃料電池およびその電極に関するものである。

【0002】

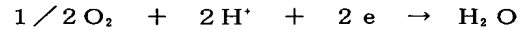
【従来の技術】水素・酸素燃料電池は、その反応生成物が原理的に水のみであり、地球環境への悪影響の殆どない発電システムとして注目されている。

【0003】現在検討されている固体高分子型燃料電池は作動温度が常温～150℃と低いため、排熱が燃料電池の補機動力等に有効利用しがたいという欠点を有している。これを補う意味でも固体高分子型は、特に高い出力密度が要求されている。また実用化への課題として、燃料及び空気利用率の高い運転条件でも高エネルギー効率、高出力密度が得られるような燃料電池セルの開発が要求されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】固体高分子型燃料電池における電解質としては、化学的安定性及び導電性の点から主として超強酸であるパーフルオロカーボンスルホン酸型陽イオン交換膜が用いられている。かかる酸性電解質中では空気極において下式のように水が生成する。

2



したがって、低作動温度、高電流密度および高ガス利用率の運転条件では、水が生成する空気極において水蒸気の凝縮による電極多孔体の閉塞（フラッディング）現象が起りやすい。長期に亘り安定な特性を得るためには、フラッディング現象が起らないように電極の撥水性を確保することが必要である。低温で高出力密度が期待される固体高分子型燃料電池では特に重要である。

【0005】このためには含フッ素物質を含有させ電極に撥水性を与えることが有効であり、従来、（1）触媒担体をフッ素化处理する方法（特開平 7-192738 号公報）や（2）含フッ素重合体を含有させる方法（特開平 5-36418 号公報）や（3）フッ化ピッチを含有させる方法（特開平 7-211324 号公報）等の方法が提案されている。このうち、（1）のようなフッ素化处理には特殊な設備や技術が必要であり、操作も面倒なものであって、直接に触媒の担体表面の改質に適用する手段としては不適切なものであった。

【0006】上記（3）の方法では、フッ化ピッチも製造工程中に重合反応を含む場合があり広義には重合体であるので、かかる（3）の方法は、上記（2）の方法に分類することもできる。（2）の方法に使用される含フッ素重合体は溶媒に可溶なものと不溶なものに大別できるが、主に不溶性なものが用いられてきた。これらのものには、例えば、テトラフルオロエチレン／ヘキサフルオロプロピレン共重合体（FEP）、テトラフルオロエチレン／パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体（PFA）やポリテトラフルオロエチレン（PTFE）がある。

【0007】これら含フッ素重合体を上記（2）の方法によって撥水化材料として適用する場合には、溶媒不溶性であることから粉体または分散液の形態で用いるしかなかった。そして、フッ素重合体を含有する電極層を形成する手段としては、含フッ素重合体を分散液の形で電極層形成後に電極の細孔内に浸入させる（2-1）方法又は含フッ素重合体を粉体又は分散液の形で電極を形成する他の材料とともに電極層形成時に同時に混合する（2-2）方法が考えられる。

【0008】燃料電池用のガス拡散電極の細孔は、電極の作製法により異なるが、通常、細孔径が 0.01 μm～数百 μm 程度に分布する。また一般に、細孔内の撥水性が不足していると、毛细管現象により細孔径の小さなものから閉塞が起こる。従って、0.05 μm 以上の細孔の内部に撥水性を付与することにより凝縮水による細孔の閉塞が少なく速やかな電極反応が可能であって、燃料電池特性の向上に寄与できる。上記の不溶性フッ素樹脂の粒径は、一次粒径が小さくとも 0.1 μm 程度である上、粉体として供給される場合には通常造粒されており平均粒子径は数 μm～500 μm 程度である。従って、不溶性フッ素樹脂を 0.05 μm 程度の細孔内部に

4

* 有しない溶媒可溶性含フッ素重合体が使用される。かかる含フッ素重合体は、これを溶解する溶剤が存在する可溶性含フッ素重合体であるが、なかでもかかる含フッ素重合体は、燃料電池電極反応における反応物または生成物となりうる水、アルコール等の水性溶媒に対して実質上不溶性であるのが好ましい。溶媒可溶性含フッ素重合体は、固体高分子型燃料電池の使用温度である、好ましくは常温から150℃で固体状態であり、スルホン酸基、カルボン酸基などのイオン交換基は、0.1ミリ当量/g乾燥樹脂以下、特には0.05ミリ当量/g乾燥樹脂以下にせしめて実質上イオン交換基を有しないものを用いる。かかる含フッ素重合体には部分フッ素化されたものとパーフルオロ化のものいずれも使用できる。

【0014】上記イオン交換基を実質上有しない溶媒可溶性含フッ素重合体の好ましい例としては、分子内に脂肪族環構造を有するパーフルオロカーボン重合体が挙げられる。かかる重合体は、上記分子構造に起因する分子のねじれにより結晶化しにくく、フッ素系溶剤に可溶となる。かかる含フッ素重合体の例としては、次の一般式の環構造を有するもの、即ち、

$$\begin{array}{c} \text{CF}_2 \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{---}(\text{CF}_2\text{---CF} \quad \text{CF}\text{---})\text{---} \\ \diagdown \quad \diagup \\ (\text{CF}_2)_1 \quad (\text{CFR})_n \\ \diagdown \quad \diagup \\ \text{O} \text{---} (\text{CF}_2)_m \end{array}$$

(ただし、 l は $0 \sim 5$ 、 m は $0 \sim 4$ 、 n は $0 \sim 1$ 、 $l + m + n$ は $1 \sim 6$ 、 R は F 又は CF_3 、)

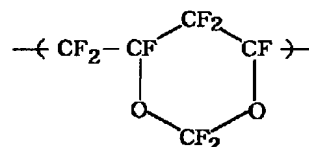
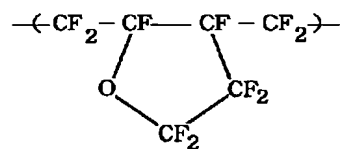
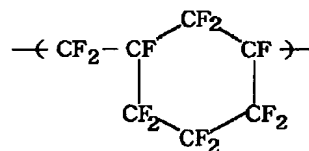
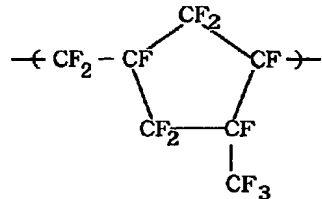
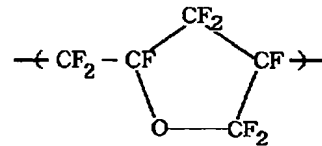
$$\begin{array}{c} \text{CF}_2 \\ \diagup \quad \diagdown \\ -(\text{CF}_2-\text{CF} \quad \text{CF}-) \\ \diagdown \quad \diagup \\ (\text{CF}_2)_o \quad (\text{CF}_2)_q \\ \quad \quad \quad \diagdown \quad \diagup \\ \quad \quad \quad (\text{CFCl})_p \end{array}$$

(ただし、 o, p, q は $0 \sim 5$ 、 $o + p + q$ は $1 \sim 6$)

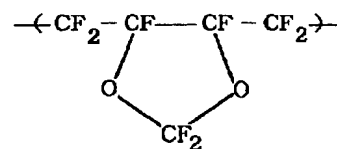
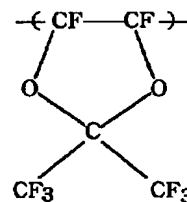
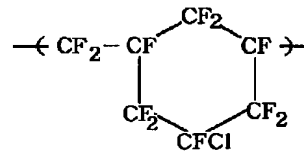
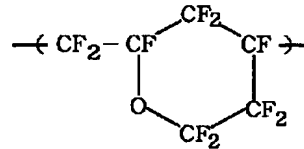
$$\begin{array}{c} \text{---CF---CF---} \\ \diagdown \quad \diagup \\ \text{O} \quad \text{O} \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{C} \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{R}_1 \quad \text{R}_2 \end{array}$$

(ただし、 R_1 は F 又は CF_3 、 R_2 は F 又は CF_3 、)
 の如き環構造を有するものが挙げられる。これらの内、
 次の如き具体的な環構造を有する含フッ素重合体が代表
 的である。

5



6



【0015】これらの含フッ素重合体は、例えば、パーフルオロベンゼン、トリフルオロエタン、アフルード（旭硝子社製のフッ素系溶剤）、パーフルオロ（2-ブチルテトラヒドロフラン）などに溶解され、濃度が0.01～50重量%の溶液が得られる。

【0016】イオン交換基を実質上有しない溶媒可溶性含フッ素重合体の他の例としては、非アクリル系の部分フッ素化された重合体が挙げられる。かかる重合体としては、フルオロオレフィンと、ビニルエーテル、ビニルエステル、アリルエーテル、アリルエステル、イソプロペニルエーテル、イソプロペニルエステル、メタリルエーテル、メタリルエステル、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステルから選ばれる少なくとも1種の単量体との共重合体が例示される。

【0017】ここで、ビニルエーテルとしては、エチルビニルエーテル、ブチルビニルエーテル、シクロヘキシルビニルエーテル、フルオロアルキルビニルエーテル、パーフルオロアルキルビニルエーテルなどのアルキルビニルエーテルが例示される。ビニルエステルとしては、分岐状のアルキル基を有するベオバー10（シエル化学社製商品名）、酢酸ビニル、酪酸ビニル、ビバリン酸ビニル、パーサチック酸ビニルなどの脂肪酸ビニルエス

ルが例示される。これらのビニルエーテル、ビニルエステルは、フッ素を含有していてもよい。

【0018】アリルエーテルとしては、エチルアリルエーテル、シクロヘキシルアリルエーテルなどのアルキルビニルエーテルが例示される。アリルエステルとしては、プロピオン酸アリル、酢酸アリルなどの脂肪酸アリルエステルが例示される。イソプロペニルエーテルとしては、メチルイソペニルエーテルなどのアルキルイソプロペニルエーテルが例示される。これらのアリルエーテルは、フッ素を含有していてもよい。

【0019】上記フルオロオレフィンを含有する共重合体では、フルオロオレフィンの含有割合が過度に大きくなると溶剤への溶解性が低下するため、フルオロオレフィンは好ましくは30～70モル%、特に40～60モル%含有されているのが好ましい。これらの含フッ素重合体は、ケトン類、エステル類、クロロエタン類、ベンゼン誘導体から選ばれる少なくとも一種に溶解され、濃度が30～70重量%にて溶解される。

【0020】上記のような本発明で使用する溶媒可溶性含フッ素重合体はモノマーに分解しにくいラジカル伝播しにくく、耐酸性、耐アルカリ性を有する。また、可溶性含フッ素重合体の分子量は好ましくは数千か

30

40

50

ら2万程度であり、濃度が等しい場合には分子量が大きいほど粘度が大きくなるが、特には、5000から1万程度のものを用いることにより、含浸操作等で用いる場合の溶液浸透性を確保する一方、細孔表面への付着力も十分であり、電極の撥水性を保持することができる。

【0021】上記可溶性含フッ素重合体の溶液を使用し、ガス拡散電極を製造する方法としては、上記種々の方法を採用することができる。すなわち本発明の溶媒可溶性含フッ素重合体の溶液は、電極の形成時に電極を形成する他の材料である触媒粉末及びイオン交換樹脂と混合しても良いし、電極形成後に上記溶液を電極に噴霧又は含浸させても良い。さらには、該溶液は、必要ならば使用により電極の撥水性が低下した場合にも、含浸等の操作により再び撥水性を付与することができる。本発明では、可溶性含フッ素重合体が溶液の形で使用されるため、各種形成材料が如何に小さい粒径を有しようが、また電極の有する細孔径が如何に小さかろうが、溶媒が乾燥し除去された後に存在する含フッ素重合体は、電極の有する細孔の表面に存在することになる。かくして、含フッ素重合体は電極において、好ましくは0.001～30重量%、さらには0.01～20重量%存在するのが好ましい。

【0022】本発明の電極を使用して固体高分子型燃料電池を製造する場合、固体高分子電解質たるイオン交換膜上に電極を直接形成する手法、カーボンペーパーなどの基材上に一旦電極を層状に形成した後にこれをイオン交換膜と接合する手法、または別の平板上に電極を形成してこれをイオン交換膜に転写する手法などの様々な手法を採用できる。ガス拡散電極の形成方法としては、好ましくは、白金族金属を活性炭等に担持した触媒粉末、イオン交換樹脂、撥水剤、及び必要に応じて、造孔剤、増粘剤、希釈溶媒等との混合液を噴霧、塗布、濾過等の既存の方法を適用できる。電極をイオン交換膜と別個に形成した場合、電極のイオン交換膜への接合法としては、ホットプレス法、接着法（特開平7-220741、特開平7-254420）などを適用できる。

【0023】電極の形成に使用されるイオン交換樹脂及び固体高分子電解質たるイオン交換膜としては、フルオロカーボンスルホン酸型イオン交換樹脂が好ましく、好ましくは、 $\text{CF}_2=\text{CF}_2$ と $\text{CF}_2=\text{CF}-\text{O}(\text{CF}_2)_m\text{CF}_2\text{X}$ （式中、 m は0～3、 n は1～12、 p は0又は1、 X はF又は CF_3 。）との共重合体からなるパーフルオロカーボンスルホン酸型イオン交換樹脂が好ましい。

【0024】上記電極に対する撥水化剤には上記イオン交換基を実質上有しない含フッ素重合体使用されるが、これとともに結着剤の役割を兼ねてPTFE、FEP、PFA等が使用でき、その使用量は電極に対して好ましくは0.01～30重量%である。増粘剤としてはエチルセルロース、メチルセルロースやセロソルブ系のもの

が使用できる。電極を形成する際の希釈溶媒としては、フルオロアルカン類、フルオロトリアルキルアミン類、フルオロアルキルテトラヒドロフラン類、ケトン類、エステル類、クロロエタン類、ベンゼン誘導体が使用できる他、メタノール、エタノール、イソプロパノールなどのアルコール類、フルオロカーボン類、ヒドロフルオロカーボン類、ヒドロクロフルオロカーボン類、水、等も使用できる。

【0025】また、従来の電極と同等以上の撥水性を有する本発明の電極は、従来よりも絶縁性樹脂の使用量が少なく済むことから薄型の電極となり、高ガス拡散性かつ低抵抗となって空気極に用いる場合はもちろんのこと、水素極に用いる場合にも有効である。

【0026】本発明は、ガス拡散電極に撥水性を付与する新規な方法が使用されており、従来のPTFE等の不溶性含フッ素重合体を用いる場合に比べて、イオン交換基を実質上有しない溶媒可溶性含フッ素重合体の溶液を用いることにより電極の有する細孔の内部の触媒表面を均一に被覆することが可能である。さらには、少量の可溶性含フッ素重合体でも撥水性を付与することができる。また、本発明の含フッ素重合体の溶液は造膜性を有するために乾燥して得られる撥水性の被膜は耐久性を確保しやすい。また製造工程としては、本発明の可溶性含フッ素重合体溶液を電極中に含有させた後に乾燥するだけでよく、従来より簡便に実施することができる。また、また従来の方法とも併用することが可能であり、簡単な操作で耐久性よく撥水性を付与することができる。

【0027】

【実施例】以下に本発明の具体的態様を実施例及び比較例によって詳しく説明するが、本発明はこれらに限定されない。

【0028】＜実施例1＞カーボンブラック粉末に白金を40重量%担持した触媒、イオン交換容量が1.1ミリ当量/g乾燥樹脂である $\text{CF}_2=\text{CF}_2$ と $\text{CF}_2=\text{CF}-\text{O}(\text{CF}_2)_m\text{CF}_2\text{X}$ （ CF_3 ）- $\text{O}(\text{CF}_2)_n\text{SO}_3\text{H}$ との共重合体からなるイオン交換樹脂のエタノールを主体とする溶液および溶媒可溶性含フッ素重合体として $\text{CF}_2=\text{CFO}(\text{CF}_2)_2\text{CF}=\text{CF}_2$ の重合体（分子量約10万、溶媒はパーフルオロ（2-ブチルテトラヒドロフラン）とパーフルオロ（トリブチルアミン）の重量比1:1の混合溶媒）の溶液とを混合して触媒分散液Aを調製した。なお、触媒分散液A中の触媒（担体を含む）、イオン交換樹脂および可溶性含フッ素重合体の重量比は0.80:0.19:0.01であった。また、可溶性含フッ素重合体を含まない触媒分散液B（溶液中の触媒とイオン交換樹脂の重量比は0.80:0.20）も同時に調製した。

【0029】固体高分子電解質なるイオン交換膜としてフレミオンS膜（旭硝子社製パーフルオロスルホン酸型イオン交換膜、イオン交換容量1.0ミリ当量/g乾燥

樹脂、膜厚 $80\mu\text{m}$)を使用し、該イオン交換膜に対して、空気極側に触媒分散液A、水素極側には触媒分散液Bを、いずれも白金含有量が $0.5\text{mg}/\text{cm}^2$ となるように噴霧し 120°C にて1時間乾燥することにより電極・膜接合体(電極面積 10cm^2)を作製した。

【0030】<比較例1>空気極側に噴霧する触媒分散液A中の撥水化剤として可溶性含フッ素重合体の代わりにPTFE微粉末(2次粒子径 $2\mu\text{m}$ 、1次粒子径 $0.1\mu\text{m}$)を使用した他は実施例1と同様にして電極・膜接合体を作製した。

【0031】<比較例2>空気極側に噴霧する触媒分散*

	出力電流密度 A/cm^2		
	10時間後	500時間後	1000時間後
実施例1	0.80	0.80	0.79
比較例1	0.80	0.65	0.53
比較例2	0.81	0.50	0.28

【0034】<実施例2>カーボンブラック粉末に白金を40重量%担持した触媒と顆粒状PTFEとを重量比40:20で混練し、白金含有量が $0.5\text{mg}/\text{cm}^2$ となるように多孔質フィルム状に延伸した後に、イオン交換容量が1.1ミリ当量/g乾燥樹脂である実施例1で使用したのと同じイオン交換樹脂溶液を $1\text{mg}/\text{cm}^2$ となるように含浸し、次いで $\text{CF}_2=\text{CFO}(\text{CF}_2)_2\text{CF}=\text{CF}_2$ の重合体(分子量約10万)をパーフルオロ(2-ブチルテトラヒドロフラン)とパーフルオロ(トリブチルアミン)の重量比1:1の混合溶媒で溶解して得られた0.05重量%の溶媒可溶性含フッ素重合体溶液を $0.01\text{mg}/\text{cm}^2$ となるように含浸し 120°C にて1時間乾燥することにより、拡散電極Aを作製した。同時に可溶性含フッ素重合体溶液を含浸させない他は同様に実施して拡散電極Bを作製した。次い※

*液Bとして、水素極側と同様、可溶性含フッ素重合体を含まない触媒分散液を使用した他は実施例1と同様にし電極・膜接合体を作製した。

【0032】これら実施例1及び比較例1、2の電極・膜接合体を測定セルに組み込み、3atm、水素/空気系、セル温度 70°C において0.65Vの定電圧駆動で連続運転したところ、表1に示す結果が得られた。出力電流密度の経時的な低下は実施例1が最も少なかった。

【0033】

10 【表1】

※で実施例1で使用したのと同じイオン交換膜に対し、空気極側には上記拡散電極Aを、水素極側には上記拡散電極Bをそれぞれ 150°C 、 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ 圧にてホットプレスし電極・膜接合体(電極面積 10cm^2)を作製した。

【0035】<比較例3>水素極側、空気極側とも可溶性含フッ素重合体を含浸しない拡散電極Bを用いる以外は実施例2と同様にして電極・膜接合体を作製した。

【0036】実施例2および比較例3の電極・膜接合体を測定セルに組み込み、3atm、水素/空気系、セル温度 70°C において0.65Vの定電圧駆動で連続運転したところ、表2に示す結果が得られた。出力電流密度の経時的な低下は実施例2の方が少なかった。

【0037】

【表2】

	出力電流密度 A/cm^2		
	10時間後	500時間後	1000時間後
実施例2	0.72	0.71	0.71
比較例3	0.72	0.50	0.40

【0038】

【発明の効果】本発明の方法を用いることによりガス拡散電極に対し簡便かつ均一に耐久性よく撥水性を付与す★

★ることが可能であり、本発明の電極を用いることにより出力特性の経時劣化の少ない固体高分子型燃料電池が得られる。

フロントページの続き

(72)発明者 寺園 真二

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地
旭硝子株式会社中央研究所内